### PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number:

04227624 A

(43) Date of publication of application: 17.08.1992

(51) Int. CI

C08G 59/40

C08G 8/08, H01L 23/31 C08G 8/28, C08G 59/62, C08L 63/00,

H01L 23/29,

(21) Application number:

03132404

(71) Applicant: SUMITOMO DUREZ CO LTD

SUMITOMO BAKELITE CO LTD

(22) Date of filing:

(30) Priority:

27.03.1991

27.03.1990 JP 02 75580

(72) Inventor:

**SAEKI YUKIO OTA MASARU** 

**TOKUNAGA YUKIO** 

16.10.1990 JP 02275431

AIBA HIROSHI

### (54) EPOXY RESIN CURING AGENT AND EPOXY **RESIN COMPOSITION**

#### (57) Abstract:

PURPOSE: To obtain an epoxy resin composition which is markedly excellent in heat resistance and moldability and suitable for sealing semiconductors by using an imide-ring-containing phenol novolak resin of a specific structure as an epoxy resin curing agent.

CONSTITUTION: An epoxy resin curing agent represented by formula I, wherein R<sub>1</sub> denotes H, CH<sub>3</sub>, OH, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>, formula II or formula III, individual R<sub>1</sub>s being identical or different; and (m+n) is an integer in the range of 1≤m+n≤6. An epoxy resin composition is prepared by mixing an epoxy resin, a phenol novolak resin base curing agent which contains 30-100wt.% above curing agent based on the total amount of the curing agent, and a curing accelerator.

COPYRIGHT: (C)1992,JPO&Japio

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平4-227624

(43)公開日 平成4年(1992)8月17日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	FΙ	技術表示箇所				
C 0 8 G 59/40	NJE	8416-4 J						
8/08	NBC	8215-4 J						
8/28	NBQ	8215-4 J						
59/62	NJS	8416-4 J						
		8617-4M	H01L	23/30 R				
,			審査請求 未請求	請求項の数3(全 8 頁) 最終頁に続く				
(21)出願番号	<b>特願平3-1324</b> 04		(71)出願人	000183277				
				住友デユレズ株式会社				
(22)出願日 平成3年(1991)3月27日		東京都千代田区内幸町1丁目2番2号						
			(71)出願人	000002141				
(31)優先権主張番号	特願平2-75580			住友ペークライト株式会社				
(32)優先日	平 2 (1990) 3 月27	日	-	東京都千代田区内幸町1丁目2番2号				
(33)優先権主張国	日本(JP)		(72)発明者	<b>新佐伯 幸雄</b>				
(31)優先権主張番号	<b>特願平2-275431</b>			東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 住				
(32)優先日	平2 (1990)10月16	日		友デユレズ株式会社内				
(33)優先権主張国	日本 (JP)		(72)発明者	太田 賢				
				東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 住				
				友ペークライト株式会社内				
				最終頁に続く				

### (54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂硬化剤及びエポキシ樹脂組成物

### (57)【要約】

【構成】 下記の一般式を有するイミド変性ノボラック 樹脂からなるエボキシ樹脂硬化剤、及びこの硬化剤を用 いたエボキシ樹脂組成物。

(式中、R<sub>1</sub> は−H、−CH<sub>3</sub> が好ましく、m+nは1 ≤m+n≤6である。)

【効果】 耐熱性、成形性、硬化性、及び機械特性において優れており、半導体などの封止材料として適している。

# (19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平4-227624

(43)公開日 平成4年(1992)8月17日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	ΡI	技術表示箇所				
C 0 8 G 59/40	NJE	8416-4 J						
8/08	NBC	8215-4 J						
8/28	NBQ	8215-4 J						
59/62	NJS	8416-4 J						
		8617 - 4M	H01L	23/30 R				
			審査請求 未請求	え 請求項の数3(全 8 頁) 最終頁に続く				
(21)出願番号	特願平3-132404		(71)出願人	000183277				
				住友デユレズ株式会社				
(22)出願日 平成3年(1991)3月27日		月27日		東京都千代田区内幸町1丁目2番2号				
			(71)出願人	000002141				
(31)優先権主張番号	特願平2-75580			住友ベークライト株式会社				
(32)優先日	平2 (1990) 3 月27	B		東京都千代田区内幸町1丁目2番2号				
(33)優先権主張国	日本 (JP)		(72)発明者	f 佐伯 幸雄				
(31)優先権主張番号	特顧平2-275431			東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 住				
(32)優先日	平2 (1990)10月16	日		友デユレズ株式会社内				
(33)優先権主張国	日本(JP)		(72)発明者	太田賢				
				東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 住				
				友ベークライト株式会社内				
				最終頁に続く				

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂硬化剤及びエポキシ樹脂組成物

# (57)【要約】

【構成】 下記の一般式を有するイミド変性ノポラック 樹脂からなるエポキシ樹脂硬化剤、及びこの硬化剤を用 いたエポキシ樹脂組成物。

(式中、R1 は-H、-CH3 が好ましく、m+nは1 ≤m+n≤6である。)

【効果】 耐熱性、成形性、硬化性、及び機械特性にお いて優れており、半導体などの封止材料として適してい る。

1

【特許請求の範囲】

\* 化剤。

【請求項1】 一般式[I]で示されるエポキシ樹脂硬\* 【化1】

$$OH \qquad O' \qquad OH \qquad (1)$$

$$H \xrightarrow{R_1} CH_1 \xrightarrow{n} CH_2 \xrightarrow{R_2} H$$

(式中、R<sub>1</sub> はーH、一CH<sub>2</sub>、一OH、 一C<sub>2</sub> H<sub>2</sub>、一C<sub>4</sub> H<sub>11</sub>、一C<sub>4</sub> H<sub>11</sub>、

から選ばれる甚である。 各尺:は同一の基でも異なる基でもよい。m+nはl≤m+n≤6の整数である。)

【請求項2】 一般式 [II] で示されるエポキシ樹脂 ※【化2】 硬化剤。 ※

【請求項3】 (A) エポキシ樹脂、(B) 請求項1又は2記載の硬化剤を総硬化剤量に対して30~100重量%含むフェノールノボラック樹脂系硬化剤、(C) 硬化促進剤を含有するエポキシ樹脂組成物。

### 【発明の詳細な説明】

[0001]

【産業上の利用分野】本発明はエポキシ樹脂硬化剤、及 40 びそれを用いたエポキシ樹脂組成物、特に半導体など電子部品の封止材料に主として使用されるエポキシ樹脂硬化剤及びエポキシ樹脂組成物に関するものである。

[0002]

【従来の技術】従来から半導体素子などの電子部品の封 止材料にはエポキシ樹脂成形材料が主として使用されて いる。このエポキシ樹脂成形材料は一般的に主剤として オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂または/お よびフェノールノボラック型エポキシ樹脂が、また硬化 剤としてノボラック型フェノール樹脂が使用され、充填 50 いった問題点がでてきている。

材、離型剤、難燃剤、カップリング剤、着色剤などと共に配合され生産される。硬化剤としてノボラック型フェノール樹脂が用いられるのは、エポキシ樹脂と反応し硬化しうるフェノール性水酸基を有していることと、ノボラック型フェノール樹脂が熱分解しにくい特長によりエポキシ樹脂封止材に耐熱性を具備させうることによる。 【0003】ところが近年、集積回路の高集積化に伴い

チップがだんだん大型化し、かつパッケージは従来のDIPタイプから表面実装化された小型、薄型のフラットパッケージ、SOP、SOJ、PLCCに変わってきている。即ち大型チップを小型で薄いパッケージに封入することになり、応力によりクラック発生、これらのクラックによる耐湿性の低下等の問題が大きくクローズアップされてきている。特に半田付けの工程において急激に200℃以上の高温にさらされると、パッケージの割れや樹脂とチップの剥離により耐湿性が劣化してしまうといった問題点がでてきている。

1

【特許請求の範囲】

\* 化剤。

【請求項1】 一般式[1]で示されるエポキシ樹脂硬\* 【化1】

(式中、R<sub>1</sub>は-H、-CH<sub>2</sub>、-OH、 -C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>、-C<sub>1</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>2</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>2</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>3</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>、-C<sub>4</sub>H<sub>11</sub> (A) H<sub>11</sub> (A) H<sub></sub>

から選ばれる基である。 各尺、は同一の基でも異なる基でもよい。m+nはl≤m+n≤6の整数である。)

【請求項2】 一般式 [II] で示されるエポキシ樹脂 ※【化2】 硬化剤。 ※

【請求項3】 (A) エポキシ樹脂、(B) 請求項1又は2記載の硬化剤を総硬化剤量に対して30~100重量%含むフェノールノボラック樹脂系硬化剤、(C) 硬化促進剤を含有するエポキシ樹脂組成物。

### 【発明の詳細な説明】

[0001]

【産業上の利用分野】本発明はエポキシ樹脂硬化剤、及 40 びそれを用いたエポキシ樹脂組成物、特に半導体など電子部品の封止材料に主として使用されるエポキシ樹脂硬化剤及びエポキシ樹脂組成物に関するものである。

[0002]

【従来の技術】従来から半導体素子などの電子部品の封 ることになり、応力によりク 止材料にはエポキシ樹脂成形材料が主として使用されて いる。このエポキシ樹脂成形材料は一般的に主剤として オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂または/お 200℃以上の高温にさらさ よびフェノールノボラック型エポキシ樹脂が、また硬化 や樹脂とチップの剥離により 割としてノボラック型フェノール樹脂が使用され、充填 50 いった問題点がでてきている。

材、離型剤、難燃剤、カップリング剤、着色剤などと共に配合され生産される。硬化剤としてノボラック型フェノール樹脂が用いられるのは、エポキシ樹脂と反応し硬化しうるフェノール性水酸基を有していることと、ノボラック型フェノール樹脂が熱分解しにくい特長によりエポキシ樹脂封止材に耐熱性を具備させうることによる。

【0003】ところが近年、集積回路の高集積化に伴いチップがだんだん大型化し、かつパッケージは従来のDIPタイプから表面実装化された小型、薄型のフラットパッケージ、SOP、SOJ、PLCCに変わってきている。即ち大型チップを小型で薄いパッケージに封入することになり、応力によりクラック発生、これらのクラックによる耐湿性の低下等の問題が大きくクローズアップされてきている。特に半田付けの工程において急激に200℃以上の高温にさらされると、パッケージの割れや樹脂とチップの剥離により耐湿性が劣化してしまうと

表 1

Г		. 9	芝 施 化	比 較 例		
L		1	2	3	1	2
組	フェノール類	フェノール			フェノール	フェノール
成	m+n	- 2	<b>フン</b> 2	ール A 3		7
特	軟化点 (℃)	123	132	142	85	101
性	水酸基価	174	101	133	105	118
硬	ガラス転移 温度 (℃)	212	224	215	181	185
化物	無数 熱変調 温度(℃)	224	237	227	194	196

【0032】なお、構造解析は核磁気共鳴スペクトル分 析装置及び質量スペクトル分析装置により行い、平均構 造のm+nを求めた。また、オルソクレゾールノポラッ ク型エポキシ樹脂(軟化点62℃、エポキシ当量20 20 た。得られた各々のエポキシ樹脂成形材料硬化物につい 9) 100部に対して実施例1、2、3及び比較例1、 2で得られたエポキシ樹脂硬化剤を各々、水酸基価に基 づきエポキシ樹脂と同当量を、また触媒として2-メチ ルイミダゾール2部、及び溶融シリカ350部、ステア リン酸カルシウム1部をミキシングロールを用いて混練\*

\*し、冷却後粉砕してエポキシ樹脂封止材料を得た。この 成形材料を温度170℃にて90秒間トランスファー成 形し、その後170℃で6時間加熱して試験片を作製し てガラス転移温度 (Tg) 及び熱変形温度 (HDT) を 測定し、その結果を表1に示した。ガラス転移温度(T g) は熱機械測定装置により、また熱変形温度(HD T) はJIS-K-7207に基づき測定した。

10

0-クレゾールノボラックエポキシ樹脂

(軟化点75℃、エポキシ当量200) 90部

【0033】 実施例4

臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂

10部 (エポキシ当量370、軟化点65℃、臭素含有率37%) イミド環含有フェノールノボラック樹脂(イ) 85部 300部 破砕状溶融シリカ 10部 三酸化アンチモン シランカップリング剤 2部 2部 トリフェニルホスフィン カーポンプラック 3部 3部 カルナパワックス

を常温で十分に混合し、更に95℃~100℃で2軸口 ールにより混練し、冷却後粉砕して成形材料とし、これ をタプレット化して半導体封止用エポキシ樹脂組成物を 型温度175℃、硬化時間2分)を用いて成形し、得ら れた成形品を175℃、8時間で後硬化し評価した。結 果を表2に示す。

### 【0034】実施例5

実施例4のイミド環含有フェノールノボラック樹脂 (イ)をイミド環含有フェノールノボラック樹脂(ロ) に変更した以外は実施例4と同様にして半導体封止用工 ポキシ樹脂組成物を得た。この半導体封止用エポキシ樹 脂組成物の評価結果を表2に示す。

【0035】 実施例6、7

同様にして表2に示す組成物の半導体封止用エポキシ樹 得た。この材料をトランスファー成形機(成形条件:金 40 脂組成物を得た。この半導体封止用エポキシ樹脂組成物 の評価結果を表2に示す。

[0036]

比較例3、4

同様にして表2に示す組成物の半導体封止用エポキシ樹 脂組成物を得た。この半導体封止用エポキシ樹脂組成物 の評価結果を表2に示す。

[0037]

【表2】

	実 施 例			比較例		
	4	5	8	7	3	4
〇 - クレゾールノボラックエボキシ樹脂 (軟化点75C、エボキシ当量200)	9 0	9 0	9 0	9 0	90	9 0
臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂 (軟化点65℃、エポキシ当量370 臭素含有率97%)	10	1 0	1 0	10	10	10
イミド漢含有フェノールノボラック樹脂 (イ) #1 イミド漢含有フェノールノボラック樹脂 (ロ) #2 イミド漢含有フェノールノボラック樹脂 (ハ) #3	8 5	8 5	9 5	4 5	10	
フェノールノボラック樹脂(軟化点110 ℃、〇H当量105)				2 5	4 4	5 0
成 スパイラルフロー (cm) #4 形 ゲ ル タ イ ム (sec) #5 性 難 型 性 #6	8 5 4 1 O	77 40 O	7 5 4 0 O	8 2 4 3 O	8 1 4 5 O	8 6 4 6 O
Tg (°C) ‡7	220	2 2 5	230	2 2 5	2 1 5	2   5
世 曲げ試験 選 哲 (260°C) kgf/mm² ±8 度 (260°C) kgf/mm² ±8 度 (260°C) kgf/m³ ±8	7 0 1. 8 2.60	7 5 1. 8 2.55	7 0 1. 9 2.70	7 5 !. 8 2.65	1 0 0 1. 8 1.85	1 1 0 1. 9 1.80
デバイス 半田耐熱性評価 (個) #9 テスト 耐 湿 性 評 価 (個) #10	8 2	0	0 2	0 1	17	2 0 5
総合 肝 低	0	0	0	0	×	×

【0038】\*1 下記式 [III] で示されるイミド \*H当量175) 環含有フェノールノボラック樹脂(軟化点120℃、O\* 【化3】

$$O = C C = O$$

$$O + C H_{\bullet} - O + C H_{\bullet} - O + H_{\bullet}$$

$$Q = C C + O$$

$$Q = Q C + O$$

$$Q = Q C C + O$$

$$Q = Q C C + O$$

$$Q = Q C + O$$

$$Q = Q$$

$$Q = Q C + O$$

$$Q = Q$$

[0039] \* 2 下記式 [IV] で示されるイミド環 ※当量185) 含有フェノールノボラック樹脂(軟化点130℃、OH※ 【化4】

【0040】\*3 下記式 [V] で示されるイミド環合 量195) 有フェノールノボラック樹脂(軟化点120℃、OH当 50 【化5】

[0041]

\*4 175℃、注入10sec、硬化120sec、 試料15gで成形した時の成形品の長さ。

\*5 175℃熱板上に試料を3gとり、ヘラで練りながら硬化するまでの時間を測定する。

\*6 52 P Q F P パッケージを形成する金型において、10 ショット後の成形品の金型離型性を目視で確認。温度は175  $\mathbb{C}$ 、硬化時間は2  $\mathcal{D}$ 。

\*7 動的粘弾性測定において、t a n  $\delta$  のピークが出現する温度。

[0042]

\*8 テンシロン曲げ測定機を用い、長さ100mm、 厚み4mm、幅10mmの樹脂組成物成形品を、スパン 64mmの3点曲げで測定。260℃、負荷速度10m m/min。

\*9 成形品(チップ状サイズ $36\,\mathrm{mm}^2$ 、パッケージ 厚2. $0\,\mathrm{mm}$ )20ケの温度サイクルのテスト(+15 $0\sim-196\,\mathrm{C}$ )にかけ、500サイクルのテストを行いクラックの発生した個数を示す。

\*10 成形品 (チップサイズ36mm²、パッケージ

10 厚2.0mm) 20ケについて、85℃、85%RHの水蒸気下で24時間処理後、215℃のVPS処理を90秒行った後、125℃、100%RHの水蒸気下で500時間処理を行い、ICチップの故障が生じた個数を示す。

[0043]

【発明の効果】本発明による新規なエポキシ樹脂硬化剤を使用したエポキシ樹脂組成物は、高水準の耐熱性及び成形性に優れた硬化性、機械的特性が得られ、耐熱性エポキシ樹脂硬化剤として極めて有用であり、半導体など電子部品のエポキシ樹脂封止材料、エポキシ樹脂粉体塗料及びエポキシ樹脂積層板などに好適に使用されるものである。

【0044】本発明のイミド環含有フェノールノボラック樹脂及びエポキシ樹脂、硬化促進剤、無機充填材を必須成分とするエポキシ樹脂組成物は、半導体等の封止材料として半田耐熱性、耐湿性及び成形性に優れているなどバランスのとれた樹脂組成物であるために、高集積度1 C封止用樹脂組成物として非常に信頼性の高いものである。

## フロントページの続き

(51) Int. Cl. 5

識別記号 庁内整理番号

8416-4 J

FΙ

技術表示箇所

C 0 8 L 63/00 H 0 1 L 23/29

23/31

(72)発明者 徳永 幸雄

東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 住友デュレズ株式会社内

NJT

(72)発明者 相庭 博

東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 住 友デユレズ株式会社内 TI Novel curing agent for epoxy resin compsns. and semiconductor device sealants - prepd. by imidisation of phenol-aniline-formaldehyde polymer.

DC A21 A60 E13 G02

PA (SUMV) SUMITOMO DUREZ CO

CYC 1

PI JP 04227624 A 19920817 (199239)\* 8<--JP 3137295 B2 20010219 (200112) 8

ADT JP 04227624 A JP 1991-132404 19910327; JP 3137295 B2 JP 1991-132404 19910327

FDT JP 3137295 B2 Previous Publ. JP 04227624

19900327; JP 1990-275431 PRAI JP 1990-75580 19901016

JP 04227624 A UPAB: 19931114

Epoxy resin curing agents of formula (I) and (II) are new. R1 is -H, -CH3, -OH, -C3H7, -C8H17, -C9H19, -C(CH3)2-(C6H5), -C(CH3)2-(P-C6H4) OH; -CH2-(p-C6H4)-OH, -C6H5; m+n=1-6; R2 is (i)-(iii); and q(p+q)=0.05-0.8. Epoxy resin compsn. (III) comprising (a) epoxy resin(s)(IV), (b) novolak-type phenol resin contg. agent (V) contg. 30-100 wt.% of (I) and/or (II) and (c) curing accelerator(s)(VI) is also claimed.

(I)-contg. (V) is prepd. by (1) reaction of phenol(s)(e.g. phenol, cresols, bisphenol A etc) and aniline(s) with formaldehyde(pref. formalin) in water or aqueous solvent in presence of acid catalyst or base catalyst with heating, (2) removing water from the reaction prod. under reduced pressure, (3) heating the residue at high temp., (4) reaction of the reaction prod. with phthalic anhydride, and, (5) removing unreacted materials under reduced pressure at high temp. to obtain (I)-contg. (V). (III) is prepd. by blending (a) cpd(s), having two or more epoxy gps. per molecule (e.g. bisphenol A epoxy resin, novolak-type phenol resin etc), (b)(I) and/or (II), and, (c) tert-amine(s), imidazole(s), DBU, triphenylphosphine etc. One or more additive(s), e.g. inorganic filler (pref. crystalline silica, molten silica), surface lubricant, flame retardant, colouring material, silane coupling agent, thermoplastic resin etc. may be added to (III) as needed.

USE/ADVANTAGE - (III) is useful as sealant for semiconductor device. (III) has good mouldability, gives coating film with good solder resistance, mechanical strength, resistance to thermal shock, heat and moisture.